

PCT

世界知的所有権機関  
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願



<b>(51) 国際特許分類7</b> <b>C07C 37/20, 39/16, B01J 31/08</b>	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO00/23408</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 2000年4月27日 (27.04.00)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP99/05280  <b>(22) 国際出願日</b> 1999年9月28日 (28.09.99)  <b>(30) 優先権データ</b> 特願平10/300866 1998年10月22日 (22.10.98) JP  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP] 〒108-0014 東京都港区芝五丁目6番1号 Tokyo, (JP) <b>(72) 発明者; および</b> <b>(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ)</b> 岩原昌宏 (IWAHARA, Masahiro) [JP/JP] 〒745-8691 山口県徳山市新宮町1番1号 Yamaguchi, (JP) <b>(74) 代理人</b> 弁理士 東平正道 (TOHEI, Masamichi) 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株式会社内 Chiba, (JP)		<b>(81) 指定国</b> BR, CN, DE, ID, IN, KR, SG, US  <b>添付公開書類</b> 国際調査報告書 請求の範囲の補正の期限前の公開; 補正書受領の際には再公開される。
<b>(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING BISPHENOL A</b>  <b>(54) 発明の名称</b> ビスフェノールAの製造法  <b>(57) Abstract</b> A process for producing bisphenol A whose hue is stable at high temperatures and does not change. The process comprises using an acidic ion-exchange resin as a catalyst and an alkyl mercaptan as a promoter to react phenol with acetone under the conditions of a reaction temperature of 60 to 100 °C, a phenol/acetone ratio (by mole) of 6 to 13, and an acetone/mercaptan ratio (by mole) of 13 to 25 to yield bisphenol A, removing the unreacted acetone, the by-product water, and the alkyl mercaptan promoter by distillation, further removing the excess phenol by distillation, and determining the concentration of organosulfur compounds in the resultant crystals to keep the concentration thereof at 200 wt.ppm or lower.		

(57)要約

色相が高温において安定で着色しないビスフェノール A の製造法を提供する。

酸型イオン交換樹脂を触媒とし、アルキルメルカプタンを助触媒とし、フェノールとアセトンを反応させてビスフェノール A を製造する方法において、反応温度 60 ~ 100 °C、フェノール / アセトン (モル比) 6 ~ 13、アセトン / メルカプタン (モル比) 13 ~ 25 の条件で反応させ、未反応アセトン、副生水及び助触媒のアルキルメルカプタンを蒸留除去し、さらに過剰のフェノールを蒸留除去した晶析原料中の有機硫黄化合物濃度を測定し、該濃度を 200 重量 ppm 以下に保持するビスフェノール A の製造法である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
HA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャド
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BR	ブラジル	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明 細 書

## ビスフェノール A の製造法

## 技術分野

本発明は、色相が安定なビスフェノール A の製造方法に関する。

## 背景技術

ビスフェノール A [2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン] は、ポリカーボネート樹脂やポリアリレート樹脂などのエンジニアリングプラスチック、あるいはエポキシ樹脂などの原料として重要な化合物であることが知られており、近年その需要はますます増大する傾向にある。特に、ポリカーボネート樹脂の原料として用いる場合、色相が高温において安定で着色しないことが要求されている。

ビスフェノール A は、酸性触媒及び、場合により用いられるアルキルメルカプタンなどの硫黄化合物助触媒の存在下、過剰のフェノールとアセトンとを縮合させることにより製造されることは知られている。この方法において、従来よりビスフェノール A の色相改善を目的にいろいろな試みがなされている。

例えば、特公昭 40-19333 号公報には、シュウ酸やクエン酸をフェノール／水／ビスフェノール A 混合物中に加えた後、蒸留処理することにより、色相の改善されたビスフェノール A を得る方法が開示されている。また、特公昭 47-

4 3 9 3 7 号には、チオグリコール酸、グリコール酸又はポリリン酸を添加する方法、特開平 2 - 2 3 1 4 4 4 号公報には、乳酸、リンゴ酸又はグリセリン酸を添加する方法が開示されている。さらに、特公平 7 - 7 8 0 3 0 号公報には、脂肪族カルボン酸を添加し、フェノールアダクトよりフェノールを減圧下で蒸発除去する方法が記載されている。しかし、以上の方法はいずれも第 3 物質の添加が必要でプロセスとして煩雑となり、またビスフェノール A の色相改善の効果は未だ不十分であった。

本発明は、上記観点からなされたもので、色相が高温において安定で着色しないビスフェノール A の製造法を提供することを目的とするものである。

#### 発明の開示

本発明者は鋭意研究の結果、触媒として酸型イオン交換樹脂を、助触媒としてアルキルメルカプタンを使用して、フェノールとアセトンとを反応させた場合、反応混合物の濃縮液からビスフェノール A とフェノールとの付加物を結晶として回収する際の晶析原料中の有機硫黄化合物濃度が、ビスフェノール A の高温における色相に影響を及ぼすことを見出し、本発明を完成したものである。

すなわち、本発明は、酸型イオン交換樹脂を触媒とし、アルキルメルカプタンを助触媒とし、フェノールとアセトンとを反応させてビスフェノール A を製造する方法において、反応温度 6 0 ~ 1 0 0 ℃、フェノール／アセトン（モル比） 6 ~ 1 3、アセトン／アルキルメルカプタン（モル比） 1 3 ~ 2 5

の条件で反応させ、未反応アセトン、副生水及び助触媒のアルキルメルカプタンを蒸留除去し、さらに過剰のフェノールを蒸留除去して得た晶析原料中の有機硫黄化合物濃度を200重量ppm以下に保持することを特徴するビスフェノールAの製造法を提供する。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明について詳細に説明する。

本発明においてビスフェノールAは、触媒として酸型イオン交換樹脂を、助触媒としてアルキルメルカプタンを使用し、過剰のフェノールとアセトンを反応させることにより合成される。

酸型イオン交換樹脂としては、例えば、スルホン酸型陽イオン交換樹脂が好適に用いられる。具体的には、スルホン化スチレン・ジビニルベンゼンコポリマー、スルホン化架橋スチレンポリマー、フェノールホルムアルデヒドスルホン酸樹脂、ベンゼンホルムアルデヒドスルホン酸樹脂などが挙げられる。これらは単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

助触媒として用いるアルキルメルカプタンとしては、炭素数1～10のアルキル基を有するメルカプタンが好適である。具体的には、例えば、メチルメルカプタン、エチルメルカプタン、プロピルメルカプタン、オクチルメルカプタン、シクロヘキシルメルカプタンなどを挙げることができる。これらの中で、エチルメルカプタンが特に好ましい。なお、これらのアルキルメルカプタンは単独で用いてもよく、二種以上を

組み合わせて用いてもよい。

この反応における反応方法は、特に限定されないが、固定床連続反応や回分式反応が好ましく、特に固定床連続反応が好ましい。固定床連続反応を実施する場合には、液時空間速度 (LHSV) は、通常  $0.2 \sim 30 \text{ Hr}^{-1}$ 、好ましくは  $0.5 \sim 6 \text{ Hr}^{-1}$  の範囲で選ばれる。LHSV が  $0.2 \text{ Hr}^{-1}$  以下ではビスフェノール A の生産性が低下する場合があります、 $30 \text{ Hr}^{-1}$  以上では反応性が低下する場合がある。

反応温度は  $60 \sim 100^\circ\text{C}$  にする必要がある。  $60^\circ\text{C}$  未満であるとフェノール相が固化することがあり、また、  $100^\circ\text{C}$  を超えると酸型イオン交換樹脂の劣化が大きくなり好ましくない。好ましくは  $65 \sim 95^\circ\text{C}$  の範囲である。

フェノール／アセトン (モル比) は  $6 \sim 13$  にする必要がある。  $6$  未満であると、後述する晶析原料中の有機硫黄化合物濃度が  $200$  重量 ppm を超え、また、  $13$  を超えると反応速度が遅くなったり、フェノールの回収量が多くなり好ましくない。好ましくは  $8 \sim 12$  の範囲である。

アセトン／アルキルメルカプタン (モル比)  $13 \sim 25$  の条件で反応させる必要がある。  $13$  未満であると、後述する晶析原料中の有機硫黄化合物濃度が  $200$  重量 ppm を超え、また、  $25$  を超えると反応速度が遅くなったり、反応選択性が低くなり好ましくない。好ましくは  $17 \sim 22$  の範囲である。

反応混合物には、ビスフェノール A の他に、未反応フェノール、未反応アセトン、触媒、副生水、アルキルメルカプタン、及びアルキルメルカプタン以外の有機硫黄化合物、着色物質

等の副生物が含まれている。このため、本発明の目的に合致するビスフェノール A を製造するには後処理が必要になる。

次に、前記の反応混合物は、回分式反応を用いた場合、触媒はろ過等により分離除去される。残りの液状成分は減圧蒸留により、未反応アセトン、副生水及びアルキルメルカプタン等が除去される。蒸留塔を使用する場合、塔頂より未反応アセトン、副生水及びアルキルメルカプタン等が除去され、塔底よりビスフェノール A 及びフェノール等を含む液状混合物が得られる。

固定床連続反応でフェノールとアセトンを反応させた場合、脱触媒の必要はない。反応器から排出された液状成分については上記と同様の処理がなされる。

減圧蒸留は、圧力 50 ～ 600 Torr、温度 70 ～ 180℃ の範囲で実施することができる。この条件下、蒸留塔を用いて未反応アセトン、副生水及びアルキルメルカプタンを除去する場合、未反応フェノールが共沸し、その一部は塔頂より系外へ除かれる。

上記の方法により、反応混合物から未反応アセトン、副生水及び助触媒のアルキルメルカプタンが蒸留除去される。

反応混合物から上記の物質を除いた液に対しては、更にフェノールが減圧蒸留により留去され、ビスフェノール A は濃縮される。この濃縮残液が次工程の晶析原料となる。

濃縮条件については特に制限はないが、通常温度 100 ～ 170℃、圧力 40 ～ 500 Torr の条件で行われる。温度が 100℃ より低いと高真空が必要となり、170℃ より高いと次の晶析工程で余分な除熱が必要となる。また、濃縮残液の

ビスフェノール A の濃度は 20 ～ 50 重量 %、好ましくは 20 ～ 40 重量 % の範囲である。この濃度が 20 重量 % 未満であるとビスフェノール A の回収率が低く、50 重量 % を超えると晶析後のスラリーの移送が困難となる。

本発明においては、この濃縮残液の有機硫黄化合物濃度を測定する。該濃度は 200 重量 ppm 以下にする必要がある。200 重量 ppm を超えると、得られるビスフェノール A の色相が悪化する。有機硫黄化合物濃度は、ガスクロマトグラフィーや全硫黄分析計など公知の機器、方法を用いて測定することができる。

該有機硫黄化合物としては、例えば、主として、ジアルキルジスルフィド、チオアセタール、アセトン二量化物のメルカプタン付加物、フェノールとアセトンとメルカプタンとの反応物等のメルカプタン由来の副生物を挙げることができる。

この有機硫黄化合物濃度を 200 重量 ppm 以下にすることにより、色相が高温において安定で着色しないビスフェノール A を得ることができる。すなわち、この有機硫黄化合物濃度を指標にすることにより、製品のビスフェノール A のオフスペックを判定でき、触媒の交換時期を判定できる。好ましい有機硫黄濃度の指標は 50 重量 ppm 以下である。

本発明は、前記第 3 物質を用いることなしに、有機硫黄化合物濃度を 200 重量 ppm 以下にしたビスフェノール A の製造法に関するものである。

前記濃縮残液は、40 ～ 70℃まで冷却する。すると、ビスフェノール A とフェノールとの付加物（以下、フェノールアダクトと略称する）が晶析し、スラリー状になる。冷却は、



例えば、外部熱交換器や晶析機に加えられる水の蒸発による除熱によって行うことができる。

次に、スラリー状の濃縮残液は、濾過、遠心分離等によりフェノールアダクト結晶と反応副生物を含む晶析母液に分離される。この晶析母液は、直接又は一部反応器へリサイクルしたり、一部又は全部をアルカリ分解しフェノールとイソプロペニルフェノールとして回収することができる。また、一部又は全部を異性化して晶析原料にリサイクルすることもできる（特開平6-321834号公報参照）。

上記で得られたビスフェノールAとフェノールとのアダクトの結晶は100～160℃で加熱すると、液状混合物になる。この液状混合物から、減圧蒸留によってフェノールを除去し、ビスフェノールAを熔融状態で回収することができる。減圧蒸留の条件は、通常、圧力10～100 Torr，温度150～190℃の範囲である。更に、スチームストリッピングにより残存するフェノールを除去することもできる。

熔融状態のビスフェノールAは、スプレードライヤー等の造粒装置により液滴にされ、冷却固化されて製品となる。液滴は、噴霧、散布等により作られ、窒素や空気等によって冷却固化される。

## 実施例

次に、本発明を実施例により具体的に説明するが、これらの実施例になんら制限されるものではない。

### 〔実施例1〕

内径20mm、高さ1,500mmの充填層式の反応器にス

ルホン酸型イオン交換樹脂（三菱化学（株）製、ダイヤイオン-104H）を充填した。反応温度80℃に保ち、反応器入口より、フェノール、アセトン及びエチルメルカプタンを、フェノール／アセトン（モル比）＝10、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝20、 $LHSV = 1\text{ Hr}^{-1}$ の条件で流通させ、反応を行った。アセトン転化率75％に落ち着いたところで、反応液を採取した。反応液は圧力500 Torr，温度172℃にて未反応アセトンや一部の過剰フェノールを留去した。更に、圧力118 Torr，温度134℃にて過剰フェノールを留去し、ビスフェノールA濃度を40重量％に濃縮した。この濃縮液（晶析原料）中には、有機硫黄化合物が20重量ppm含まれていた。この濃縮液を43℃に冷却してフェノールアダクトを晶析させ、次いで固液分離した。フェノールアダクト結晶は、圧力30 Torr，温度170℃にてフェノールを除去しビスフェノールAを得た。晶析母液は、その90％をスルホン酸型イオン交換樹脂（三菱化学（株）製、ダイヤイオン-SK104H）触媒により、反応温度80℃にて異性化反応を行った後、晶析原料としてリサイクルした。残りの10％は、フェノールを回収して排出した。晶析母液の90％を上記方法で処理してリサイクルした場合においても、有機硫黄化合物が200重量ppmを超えることはなかった。

得られたビスフェノールAの色相評価は、空気雰囲気下で220℃，30分間加熱し、目視によりAPHA標準液を用いて行った。その結果10APHAで良好であった。

〔実施例2〕

実施例 1 において、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝ 1 7 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 2 5 重量 p p m で、生成したビスフェノール A の色相は 1 0 A P H A で良好であった。

〔実施例 3〕

実施例 1 において、反応温度 8 5 ℃、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝ 2 2 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 1 8 重量 p p m で、生成したビスフェノール A の色相は 1 0 A P H A で良好であった。

〔実施例 4〕

実施例 1 において、反応温度 7 0 ℃、フェノール／アセトン（モル比）＝ 9 、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝ 1 8 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 3 8 重量 p p m で、生成したビスフェノール A の色相は 1 0 A P H A で良好であった。

〔比較例 1〕

実施例 1 において、反応温度 8 5 ℃、フェノール／アセトン（モル比）＝ 6 、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝ 1 0 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 2 4 7 重量 p p m で、生成したビスフェノール A の色相は 3 0 A P H A であり、良好な色相が得られなかった。

〔比較例 2〕

実施例 1 において、反応温度 95℃、フェノール／アセトン（モル比）＝5、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝8 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 386 重量 ppm で、生成したビスフェノール A の色相は 35 APHA であり、良好な色相が得られなかった。

〔比較例 3〕

実施例 1 において、反応温度 90℃、フェノール／アセトン（モル比）＝4、アセトン／エチルメルカプタン（モル比）＝7 に変更したこと以外は同様にビスフェノール A を製造した。晶析原料中の有機硫黄化合物濃度は 523 重量 ppm で、生成したビスフェノール A の色相は 45 APHA であり、良好な色相が得られなかった。

産業上の利用可能性

本発明によれば、晶析原料中の有機硫黄化合物濃度を 200 重量 ppm 以下にすることができる。したがって、色相が高温において安定で着色しないビスフェノール A を製造することができる。

また、背景技術で説明した第 3 物質の添加が不要なため、簡易な製造プロセスが採用できる。

更に、晶析原料中の有機硫黄化合物濃度を指標にすることにより、製品のビスフェノール A のオフスペックを判定でき、触媒の交換時期を判定できる。したがって、色相が高温において安定で着色しないビスフェノール A を安定的に製造することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 酸型イオン交換樹脂を触媒とし、アルキルメルカプタンを助触媒とし、フェノールとアセトンを反応させてビスフェノール A を製造する方法において、反応温度 60～100℃、フェノール／アセトン（モル比）6～13、アセトン／アルキルメルカプタン（モル比）13～25 の条件で反応させ、未反応アセトン、副生水及び助触媒のアルキルメルカプタンを蒸留除去し、さらに過剰のフェノールを蒸留除去した晶析原料中の有機硫黄化合物濃度を 200 重量 ppm 以下に保持することを特徴するビスフェノール A の製造法。
2. 酸型イオン交換樹脂が、スルホン酸型陽イオン交換樹脂である請求の範囲第 1 項記載のビスフェノール A の製造法。
3. アルキルメルカプタンが、エチルメルカプタンである請求の範囲第 1 項又は第 2 項に記載のビスフェノール A の製造法。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/05280

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C07C37/20, C07C39/16, B01J31/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C07C37/20, C07C39/16, B01J31/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 630878, A1 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO. LTD.), 28 December, 1994 (28.12.94) & JP, 6-321834, A	1-3
A	EP, 616993, A1 (GENERAL ELECTRIC COMPANY), 28 September, 1994 (28.09.94) & JP, 7-2716, A & US, 5315042, A	1-3
A	JP, 8-325185, A (Chiyoda Corporation), 10 December, 1996 (10.12.96) (Family: none)	1-3
A	JP, 10-212258, A (Chiyoda Corporation), 11 August, 1998 (11.08.98) (Family: none)	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
08 February, 2000 (08.02.00)Date of mailing of the international search report  
22 February, 2000 (22.02.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP99/05280

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 C07C37/20, C07C39/16, B01J31/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 C07C37/20, C07C39/16, B01J31/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAPLUS (STN), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP, 630878, A1 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO. LTD.) 28. 12月. 1994 (28. 12. 94) & JP, 6-321834, A	1 ~ 3
A	EP, 616993, A1 (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 28. 9月. 1994 (28. 09. 94) & JP, 7-2716, A & US, 5315042, A	1 ~ 3
A	JP, 8-325185, A (千代田化工建設株式会社) 10. 12月. 1996 (10. 12. 96) (ファミリーなし)	1 ~ 3
A	JP, 10-212258, A (千代田化工建設株式会社) 11. 8月. 1998 (11. 08. 98) (ファミリーなし)	1 ~ 3

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリ

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 02. 00

国際調査報告の発送日

22.02.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

本堂 裕司

4H

9049

電話番号 03-3581-1101 内線 3443